

日本国特許庁
JAPAN PATENT OFFICE

PCT/JP 2004/017023

08.12.2004

別紙添付の書類に記載されている事項は下記の出願書類に記載されている事項と同一であることを証明する。

This is to certify that the annexed is a true copy of the following application as filed with this Office.

出願年月日
Date of Application: 2003年11月20日

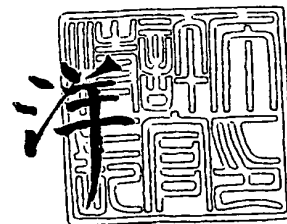
出願番号
Application Number: 特願2003-390344
[ST. 10/C]: [JP 2003-390344]

出願人
Applicant(s): 電気化学工業株式会社

2005年 1月20日

特許庁長官
Commissioner,
Japan Patent Office

小川



BEST AVAILABLE COPY

出証番号 出証特2004-3122963

【書類名】 特許願
【整理番号】 A105580
【あて先】 特許長官殿
【国際特許分類】 C23C 14/24
H05B 3/02

【発明者】
【住所又は居所】 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内
【氏名】 須崎 純一

【発明者】
【住所又は居所】 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内
【氏名】 宮井 明

【発明者】
【住所又は居所】 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内
【氏名】 渡辺 祥二郎

【発明者】
【住所又は居所】 福岡県大牟田市新開町 1 電気化学工業株式会社 大牟田工場内
【氏名】 五十嵐 厚樹

【特許出願人】
【識別番号】 000003296
【氏名又は名称】 電気化学工業株式会社
【代表者】 晝間 敏男

【手数料の表示】
【予納台帳番号】 028565
【納付金額】 21,000円

【提出物件の目録】
【物件名】 特許請求の範囲 1
【物件名】 明細書 1
【物件名】 要約書 1

【書類名】 特許請求の範囲**【請求項 1】**

二硼化チタン (TiB_2) 及び/又は二硼化ジルコニウム (ZrB_2) と窒化硼素 (BN) を含有してなるセラミックスの上面に、通電方向と平行でない方向に、幅 0.1 ~ 1.5 mm、深さ 0.03 ~ 1.0 mm、長さ 1 mm 以上の溝を 1 本又は 2 本以上を有してなることを特徴とする金属蒸発発熱体。

【請求項 2】

通電方向と平行でない方向が、通電方向に対して 20 ~ 160 度であることを特徴とする請求項 1 記載の金属蒸発発熱体。

【請求項 3】

溝の本数が 10 本以上であることを特徴とする請求項 1 又は 2 記載の金属蒸発発熱体。

【請求項 4】

溝同士を交差させ、その交差点が少なくとも一カ所あることを特徴とする請求項 3 記載の金属蒸発発熱体。

【請求項 5】

セラミックスがキャビティを有し、その底面に溝を形成させてなることを特徴とする請求項 1 ~ 4 のいずれかに記載の金属蒸発発熱体。

【請求項 6】

請求項 1 ~ 5 のいずれかに記載の金属蒸発発熱体を用い、その溝の一部分又は全部と金属とを接触させた状態で、真空中、加熱することを特徴とする金属の蒸発方法。

【書類名】明細書

【発明の名称】金属蒸発発熱体及び金属の蒸発方法

【技術分野】

【0001】

本発明は、金属蒸着発熱体及び金属の蒸発方法に関する。

【背景技術】

【0002】

従来、金属蒸発発熱体（以下、「ボート」ともいう。）としては、例えば窒化ホウ素（BN）、窒化アルミニウム（AlN）、窒化チタン（TiB₂）を主成分とする導電性セラミックスの上面にキャビティを形成させたものが知られており（特許文献1）、その市販品の一例として電気化学工業社製商品名「BNコンポジットEC」がある。これの使用方は、ボートの両端をクランプで電極につなぎ電圧を印加して発熱させ、キャビティに入れたA1線材等の金属を溶融・蒸発させて蒸着膜を得、冷却される。このような操作は、繰り返し行われ、その間に冷熱サイクルと溶融金属による浸食を受けて寿命となる。

【0003】

ボート寿命は、ボートに対する溶融金属の濡れ性に大きく関係しており、濡れ性が悪いと、溶融金属は局在化しボート本来の蒸着効率が得られないばかりか、ボートに対する溶融金属の腐食の進行速度を速め、ボート寿命が短くなる。そこで、ボートの濡れ性を確保するため、レーザー照射をする（特許文献2）など、種々の工夫が行われているが、十分な長寿命化は達成できていない。また、レーザー照射には多大な装置・設備が必要となる。

【特許文献1】特公昭53-20256号公報

【特許文献2】特開2000-93788号公報

【発明の開示】

【発明が解決しようとする課題】

【0004】

本発明の目的は、溶融金属に対する濡れ性を改善し、長寿命化を達成することができる金属蒸発ボート及びそれを用いた金属の蒸発方法を提供することである。

【課題を解決するための手段】

【0005】

すなわち、本発明は、二硼化チタン（TiB₂）及び／又は二硼化ジルコニウム（ZrB₂）と窒化硼素（BN）を含有してなるセラミックスの上面に、通電方向と平行でない方向に、幅0.1～1.5mm、深さ0.03～1.0mm、長さ1mm以上の溝を1本又は2本以上を有してなることを特徴とする金属蒸発発熱体である。この場合において、通電方向と平行でない方向が、通電方向に対して20～160度であることが好ましい。また、溝の本数が10本以上であることが好ましい。また、溝同士を交差させ、その交差点が少なくとも一カ所あることが好ましい。さらには、セラミックスがキャビティを有し、その底面に溝を形成させてなることが好ましい。

【0006】

また、本発明は、上記いずれかの金属蒸発発熱体を用い、その溝の一部分又は全部と金属とを接触させた状態で、真空中、加熱することを特徴とする金属の蒸発方法である。

【発明の効果】

【0007】

本発明によれば、上記目的を達成することができる。

【発明を実施するための最良の形態】

【0008】

本発明で用いるセラミックスの組成は、二硼化チタン及び／又は二硼化ジルコニウムの導電物質と、窒化硼素の絶縁物質とを少なくとも必須成分として含有するものである。窒化チタン、炭化珪素、炭化クロム等の導電物質や、窒化アルミニウム、窒化珪素、アルミナ、シリカ、酸化チタン等の絶縁物質は適宜含有させることができる。中でも、二硼化チ

タン及び／又は二硼化ジルコニウム、窒化硼素を主成分とするか、又は二硼化チタン及び／又は二硼化ジルコニウム、窒化硼素、窒化アルミニウムを主成分とするものであることが好ましい。特に好ましくは、二硼化チタン及び／又は二硼化ジルコニウム 30～60% (「質量%」、以下同じ。)、窒化硼素 70～40% であるか、又は二硼化チタン及び／又は二硼化ジルコニウム 35～55%、窒化硼素 25～40%、窒化アルミニウム 5～40% である。このような組成であると、セラミックスの加工が極めて容易となる。また、セラミックスの相対密度は 90% 以上であることが好ましい。相対密度が 90% 未満であると、熔融金属がセラミックスの気孔に浸食し、浸食が促進される。90% 以上の相対密度の実現は、上記組成に 10% を超えない範囲で後述の焼結助剤を添加すれば容易となる。

【0009】

本発明で用いるセラミックスは、二硼化チタン及び／又は二硼化ジルコニウムの導電物質と、窒化硼素の絶縁物質とを含む混合原料粉末を成形後焼結することによって製造することができる。

【0010】

原料の二硼化チタン粉末としては、金属チタンとの直接反応やチタニア等の酸化物の還元反応を利用した方法等いずれの製造法によって得られたもので良い。平均粒子径は 5～25 μm であることが好ましい。

【0011】

窒化硼素粉末としては、六方晶窒化硼素又はアモルファス窒化硼素及びこれらの混合物であることが好ましい。これは、硼砂と尿素の混合物をアンモニア雰囲気中、800℃以上で加熱する方法、硼酸又は酸化硼素と磷酸カルシウムの混合物をアンモニウム、ジシアンジアミド等の含窒素化合物を 1300℃以上で加熱する方法などによって製造することができる。更には、窒化硼素粉末を窒素雰囲気中で高温加熱し、結晶性を高めたものでも良い。窒化硼素粉末の平均粒子径は、10 μm 以下、特に 5 μm 以下であることが好ましい。

【0012】

窒化アルミニウム粉末は、直接窒化法、アルミナ還元法などで製造されたものでよく、平均粒子径は 10 μm 以下、特に 7 μm 以下であることが好ましい。

【0013】

焼結助剤としては、アルカリ土類金属酸化物、希土類元素酸化物及び加熱によってこれらの酸化物となる化合物から選ばれた一種又は二種以上の粉末が用いられる。具体的には、CaO、MgO、SrO、BaO、 Y_2O_3 、 La_2O_3 、 Ce_2O_3 、 Pr_2O_3 、 Nd_2O_3 、 Pm_2O_3 、 Sm_2O_3 、 Eu_2O_3 、 Gd_2O_3 、 Tb_2O_3 、 Dy_2O_3 、 Ho_2O_3 、 Er_2O_3 、 Tm_2O_3 、 Yb_2O_3 、 Lu_2O_3 など、更には $\text{Ca}(\text{OH})_2$ 等の水酸化物や、 MgCO_3 等の炭酸塩等、加熱によってこれらの酸化物となる化合物などを例示することができる。焼結助剤の平均粒子径は 5 μm 以下、特に 1 μm 以下であることが好ましい。

【0014】

上記成分を含む混合原料粉末は、好ましくは造粒されてから、成形・焼結される。成形・焼結条件の一例をあげると、0.5～200 MPa の一軸加圧又は冷間等方圧加圧した後、1800～2200℃の温度下における常圧焼結又は 1 MPa 以下の低圧焼結である。更には、1800～2200℃、1～100 MPa のホットプレス又は熱間等方圧プレスである。

【0015】

焼結は、黒鉛製容器、窒化硼素製容器、窒化硼素で内張した容器に収納して行うことが望ましい。ホットプレス法では、黒鉛又は窒化硼素製スリーブ、窒化硼素で内張したスリーブを用いて焼結することが好ましい。

【0016】

セラミックスからポートを製造するには、例えば機械加工等によって適宜形状に加工す

ることによって行うことができる。また、本発明のポートは、必要に応じてセラミックス上面のほぼ中央部にキャビティが設けることもできる。ポート形状の一例を示せば、全体寸法が縦100～200mm×幅25～35mm×高さ8～12mmであり、キャビティ寸法が縦90mm～120mm×幅20～32mm×深さ0.5～2.0mmである。

【0017】

【0017】
本発明のポートは、セラミックス上面に、通電方向（すなわち電極と電極を結ぶ方向）と平行でない方向に、1本又は2本以上の溝を有するものである。通電方向と平行でない方向の好適な角度は、通電方向に対して20～160度、特に60～120度である。溝は、幅が0.1mm～1.5mm、深さが0.03mm～1.0mm、長さが1mm以上である。望ましくは、幅0.3～1.0mm、深さ0.05～0.2mm、長さ10mm以上である。溝の本数は、1本であっても熔融金属に対する濡れ性を改善することができる。溝の本数は、10本以上、更には30本以上である。これらの中にあっても、溝同士を交差させ、その交差点を少なくとも一カ所、好ましくは溝の本数と同数以上の交差点を形成させることによって、通電方向と平行方向の濡れ拡がり性を更に抑制し、直交方向への濡れ拡がり性を助長できるので、濡れ性が一段と向上する。

【0018】

【0018】
従来の標準的なボートは、アルミニウムなどの溶融金属が側面から零れ落ちることを防止するためにキャビティが形成されているが、本発明では溝を有させることによって、キャビティは必ずしも必要ではない。本発明において、キャビティを有するものにあつては、溝はキャビティ底面に形成することが好ましい。

【0019】

【0019】
本発明の金属の蒸発方法は、本発明のボートの溝部の一部分又は全部（溝が1本の場合には、その溝の一部である場合を含む。）に接触させてA1線材等の金属を供給し、それを真空下、加熱して、熔融金属と溝とを接触させながら加熱を続けるものである。これによって、対象物質に金属蒸着膜が形成される。真空加熱の条件の一例を示せば、真空度0.1×10⁻²～1×10⁻³ Pa、温度1400～1600℃である。

【实施例】

【0020】

实施例 1

実施例 1
二硼化チタン 粉末 (平均粒子径 $1.2 \mu\text{m}$) 45 質量%、窒化硼素粉末 (平均粒子径 $0.7 \mu\text{m}$)、30 質量%及び窒化アルミニウム粉末 (平均粒子径 $1.0 \mu\text{m}$) 25 質量%の混合原料粉末を黒鉛ダイスに充填し、温度 1750°C でホットプレスを行ってセラミックス (相対密度 94.5%、直径 200mm ×高さ 20mm) を製造した。このセラミックスから、長さ 150mm ×幅 30mm ×厚み 10mm の直方角柱体を切り出し、その上面中央部に幅 26mm ×深さ 1mm ×長さ 120mm のキャビティを機械加工により設けた。このキャビティ底面に、幅 1mm 、深さ 0.15mm 、長さ 20mm の溝を 1mm 間隔幅、通電方向に対して 90° にして、50 本機械加工し、ボートを製造した。

【0021】

实施例 2

実施例 2
溝の寸法を、幅 0.5 mm、深さ 0.1 mm、長さ 20 mm としたこと以外は、実施例 1 と同様にしてボートを製造した。

【0022】

实施例 3

実施例 3
ボートのキャビティ底面に、通電方向に対して45度にした、幅1mm、深さ0.15mm、長さ28mmの溝を1mm間隔に40本機械加工し、さらにこの溝と直交する通電方向に対して135度の傾きをもつ同形状の溝を40本交差させて機械加工したこと以外は、実施例1と同様にしてボートを製造した。

【0023】

实施例 4

実施例 4
直方角柱体の上面中央部に、キャビティを形成させることなく、直接、幅 1.5 mm、

深さ 0.2 mm、長さ 120 mm の溝を 1 本加工したこと以外は、実施例 1 と同様にしてボートを製造した。

【0024】

実施例 5

溝を 1 mm 間隔幅で 50 本加工したこと以外は、実施例 4 と同様にしてボートを製造した。

【0025】

比較例 1

直方角柱体に溝を形成させなかったこと以外は、実施例 1 と同様にしてボートを製造した。

【0026】

比較例 2

溝の寸法を、幅 2.0 mm としたこと以外は、実施例 1 と同様にしてボートを製造した。

【0027】

比較例 3

溝の寸法を、深さ 2.0 mm としたこと以外は、実施例 1 と同様にしてボートを製造した。

【0028】

得られたボートの熔融金属に対する濡れ性を評価するため、ボート端部をクランプで電極につなぎボート中央部の温度が 1550℃ となるように印加電圧を決定し設定した。次いで、ボートに電圧を印加して加熱し、真空度 2×10^{-2} Pa の真空中、アルミニウムワイヤーを毎分 6.5 g/分の速度で 5 分間、溝部に供給し、熔融アルミニウムと溝と接触させた状態で加熱を続けた。アルミニウム供給開始 5 分後のボート上面を写真撮影し、赤熱部と熔融金属部の比較から、ボート全体に対する濡れ面積比率を算出して、ボートの濡れ性評価を行った。それらの結果を表 1 に示す。

【0029】

また、ボート寿命を評価した。すなわち、ボート中央部の温度を 1500℃ とし、真空度 2×10^{-2} Pa の真空中、アルミニウムワイヤーを 6.5 g/分の割合で供給しながら 40 分間を単位サイクルとして蒸発試験を行い、この操作を繰り返し行った。そして、ボートのアルミニウム蒸発面上の浸食深さが最大 3 mm になったときの繰り返し回数をボートの寿命とした。それらの結果を表 1 に示す。

【0030】

【表 1】

	実施例					比較例		
	1	2	3	4	5	1	2	3
濡れ面積比率 (%)	41	43	39	16	41	12	15	13
ボート寿命 (回)	12	11	13	10	12	9	9	8

【産業上の利用可能性】

【0031】

本発明のボート及び金属の蒸発方法は、各種金属を例えばフィルム等に蒸着するのに用いられる。

【書類名】要約書

【要約】

【課題】溶融金属に対する濡れ性を改善し、長寿命化を達成することができる金属蒸発ポ
ート及びそれを用いた金属の蒸発方法を提供する。

【解決手段】二硼化チタン (TiB_2) 及び/又は二硼化ジルコニウム (ZrB_2) と窒化硼素 (BN) を含有してなるセラミックスの上面に、通電方向と平行でない方向に、幅 0.1~1.5 mm、深さ 0.03~1.0 mm、長さ 1 mm 以上の溝を 1 本又は 2 本以上を有してなることを特徴とする金属蒸発発熱体。この場合において、通電方向と平行でない方向が、通電方向に対して 20~160 度であるなどが好ましい。また、この金属蒸発発熱体を用い、その溝の一部分又は全部と金属とを接触させた状態で、真空中、加熱することを特徴とする金属の蒸発方法である。

【選択図】 なし

認定・付加情報

特許出願の番号

特願 2003-390344

受付番号

50301915127

書類名

特許願

担当官

第五担当上席

0094

作成日

平成15年11月21日

<認定情報・付加情報>

【提出日】

平成15年11月20日

特願 2003-390344

出願人履歴情報

識別番号

[000003296]

1. 変更年月日
[変更理由]

住所
氏名

2000年12月 4日

住所変更

東京都千代田区有楽町1丁目4番1号

電気化学工業株式会社

Document made available under the Patent Cooperation Treaty (PCT)

International application number: PCT/JP04/017023

International filing date: 16 November 2004 (16.11.2004)

Document type: Certified copy of priority document

Document details: Country/Office: JP
Number: 2003-390344
Filing date: 20 November 2003 (20.11.2003)

Date of receipt at the International Bureau: 04 February 2005 (04.02.2005)

Remark: Priority document submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b)



World Intellectual Property Organization (WIPO) - Geneva, Switzerland
Organisation Mondiale de la Propriété Intellectuelle (OMPI) - Genève, Suisse

**This Page is Inserted by IFW Indexing and Scanning
Operations and is not part of the Official Record.**

BEST AVAILABLE IMAGES

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images include but are not limited to the items checked:

☒ **BLACK BORDERS**

☐ **IMAGE CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES**

☐ **FADED TEXT OR DRAWING**

☐ **BLURRED OR ILLEGIBLE TEXT OR DRAWING**

☐ **SKEWED/SLANTED IMAGES**

☐ **COLOR OR BLACK AND WHITE PHOTOGRAPHS**

☐ **GRAY SCALE DOCUMENTS**

☒ **LINES OR MARKS ON ORIGINAL DOCUMENT**

☒ **REFERENCE(S) OR EXHIBIT(S) SUBMITTED ARE POOR QUALITY**

☐ **OTHER:** _____

IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.

As rescanning these documents will not correct the image problems checked, please do not report these problems to the IFW Image Problem Mailbox.